

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-234151

(43)Date of publication of application : 29.08.2000

(51)Int.Cl.

C22C 38/00
C22C 38/32
H01F 1/053

(21)Application number : 11-350983

(71)Applicant : SHIN ETSU CHEM CO LTD

(22)Date of filing : 10.12.1999

(72)Inventor : YAMAMOTO KENJI
MINOWA TAKEHISA
TADAMI KORO

(30)Priority

Priority number : 10355728 Priority date : 15.12.1998 Priority country : JP
10355736 15.12.1998 JP

(54) RARE EARTH-IRON-BORON SYSTEM RARE EARTH PERMANENT MAGNET MATERIAL

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an R-Fe-B system rare earth permanent magnet material excellent in both of high coercive force and residual magnetic flux density.

SOLUTION: This material has a compsn. composed of, by weight, 28 to 35% R (R denotes one or \geq two kinds among rare earth elements selected from Nd, Pr, Dy, Tb and Ho), 0.1 to 3.6% Co, 0.9 to 1.3% B, 0.05 to 1.0% Al, 0.02 to 0.25% Cu, 0.02 to 0.3% Zr and/or Cr, 0.03 to 0.1% C, 0.1 to 0.8% O, 0.002 to 0.02% N, and the balance Fe with inevitable impurities.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 21.08.2003

[Date of sending the examiner's decision of rejection] 26.09.2005

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection] 2005-20608

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection] 26.10.2005

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-234151

(P2000-234151A)

(43) 公開日 平成12年8月29日 (2000.8.

(51) Int. Cl.⁷

識別記号

F I

7-73-1* (参考)

C 2 2 C 38/00

3 0 3

C 2 2 C 38/00

3 0 3 D

38/32

38/32

H 0 1 F 1/053

H 0 1 F 1/04

H

審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 6)

(21) 出願番号

特願平11-350983

(22) 出願日

平成11年12月10日 (1999. 12. 10)

(31) 優先権主張番号

特願平10-355728

(32) 優先日

平成10年12月15日 (1998. 12. 15)

(33) 優先権主張国

日本 (J P)

(31) 優先権主張番号

特願平10-355738

(32) 優先日

平成10年12月15日 (1998. 12. 15)

(33) 優先権主張国

日本 (J P)

(71) 出願人

000002060

信越化学工業株式会社

東京都千代田区大手町二丁目6番1号

(72) 発明者

山本 健治

福井県武生市北府2丁目1番5号 信

学工業株式会社磁性材料研究所内

(72) 発明者

美濃輪 武久

福井県武生市北府2丁目1番5号 信

学工業株式会社磁性材料研究所内

(72) 発明者

多々見 貴明

福井県武生市北府2丁目1番5号 信

学工業株式会社磁性材料研究所内

(74) 代理人

100062823

弁理士 山本 充一 (外2名)

(54) 【発明の名称】 R-Fe-B系希土類永久磁石材料

(57) 【要約】

【課題】 高い保磁力及び残留磁束密度のいずれにも優れたR-Fe-B系希土類永久磁石材料を提供する。

【解決手段】 重量百分率で、28～35% R (RはNd、Pr、Dy、Tb、Hoから選択される1種又は2種以上の希土類元素)、0.1～3.6% Co、0.9～1.3% B、0.05～1.0% Al、0.02～0.25% Cu、0.02～0.3% Zr及び/又はCr、0.03～0.1% C、0.1～0.8% O、0.002～0.02% N、残部Fe及び不可避の不純物か

【特許請求の範囲】

【請求項1】 重量百分率で、 $R=28\sim35\%$ (R はNd、Pr、Dy、Tb、Hoから選択される1種又は2種以上の希土類元素)、

$Co=0.1\sim3.6\%$ 、

$B=0.9\sim1.3\%$ 、

$Al=0.05\sim1.0\%$ 、

$Cu=0.02\sim0.25\%$ 、

Zr 及び/又は $Cr=0.02\sim0.3\%$ 、

$C=0.03\sim0.1\%$ 、

$O=0.1\sim0.8\%$ 、

$N=0.002\sim0.02\%$ 、

残部Fe及び不可避の不純物からなることを特徴とするR-Fe-B系希土類永久磁石材料。

【請求項2】 請求項1において、 Zr が $0.03\sim0.3\%$ であることを特徴とするR-Fe-B系希土類永久磁石材料。

【請求項3】 請求項1において、 Cr が $0.02\sim0.25\%$ であることを特徴とするR-Fe-B系希土類永久磁石材料。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、磁気特性を著しく向上させたR-Fe-B系希土類永久磁石材料に関する。

【0002】

【従来の技術】希土類永久磁石は、その優れた磁気特性と経済性から、電気・電子機器の分野で多用されており、近年、益々高性能化が要求されている。希土類永久磁石のうち、R-Fe-B系希土類永久磁石は、希土類コバルト磁石に比べて、主要元素であるNdがSmより豊富に存在し、かつCoを多量に使用しないことから原材料費が安価であり、磁気特性も希土類コバルト磁石を遥かに凌ぐ極めて優れた永久磁石である。

【0003】従来、このR-Fe-B系希土類永久磁石の磁気特性を向上させるため、種々の試みがなされている。具体的には、①安定した保磁力を得るために、Ti、Ni、Bi、V等を添加した例(特開昭59-64733号、特開昭59-132104号公報参照)、② $0.02\sim0.5\%$ のCuを添加することにより磁

素を添加すると、ほとんどの場合、保磁力(H)増加しても残留磁束密度(B_r)が低下し、したて、実質的な意味において、磁気特性の向上を図は難しかった。本発明は、高い保磁力及び残留磁束をもつR-Fe-B系希土類永久磁石材料を提供とを目的とする。

【0005】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、R-B系希土類永久磁石において、膨大な元素の中に添加する元素の種類とその量を鋭意検討したCo、Al、Cu、Zr及び/又はCrを添加し範囲の組成において、保磁力及び残留磁束密度が加することを発見し、本発明を完成するに至る。本発明は、重量百分率で、 $R=28\sim35\%$ (R はNd、Pr、Dy、Tb、Hoから選択される1種又は2種以上の希土類元素)、 $Co=0.1\sim3.6\%$ 、 $B=0.9\sim1.3\%$ 、 $Al=0.05\sim1.0\%$ 、 $Cu=0.02\sim0.25\%$ 、 Zr 及び/又は $Cr=0.02\sim0.3\%$ 、 $C=0.03\sim0.1\%$ 、 $O=0.1\sim0.8\%$ 、 $N=0.002\sim0.02\%$ Fe及び不可避の不純物からなることを特徴とするR-Fe-B系希土類永久磁石材料である。

【0006】

【発明の実施の形態】本発明のR-Fe-B系希土類永久磁石材料は、上記した組成からなるものであり、残留磁束密度及び保磁力を有し、かつ角型性の点れている。本発明において、 R はNd、Pr、Dy、Tb、Hoから選択される1種又は2種以上の希土類であり、その含有量は $28\sim35\%$ (%は重量百分以下同様)の範囲である。 R の含有量が 28% 未ると保磁力が著しく減少し、また、 35% を超え残留磁束密度が著しく減少する。

【0007】本発明を構成するFeの一部をCoすると、キュリー温度(T_c)の改善が見られる。明では、Coの含有量は $0.1\sim3.6\%$ の範囲で、 0.1% 未満であるとキュリー温度の改善効果認められず、また、 3.6% を超えるとコストとなる。

【0008】本発明を構成するBの含有量は $0.9\sim1.3\%$ の範囲とする。 0.9% 未満であると保

5%の範囲とする。0.02%未満であると保磁力がほとんど増加しなくなり、また、0.25%を超えると残留磁束密度が大きく減少する。

【0011】本発明を構成するZr及びCrは、Cuと共に添加することにより、特に保磁力を増加させる点で非常に効果がある。本発明では、Zr及び/又はCrの含有量は0.02~0.3%の範囲とする。0.02%未満であると保磁力がほとんど増加しなくなり、また、0.3%を超えると残留磁束密度が大きく減少する。特にZrでは0.03~0.3%、Crは0.02~0.25%添加することが好ましい。

【0012】本発明において、酸素含有量は0.1~0.8%の範囲とする。0.1%未満であると過焼結しやすくなり、また、角型性も低下する。一方、0.8%を超えると焼結性、角型性が共に低下する。炭素含有量は0.03~0.1%の範囲とする。0.03%未満であると過焼結しやすくなり、また、角型性も低下する。一方、0.1%を超えると焼結性、角型性が共に低下する。窒素含有量は0.002~0.02%の範囲とする。0.002%未満であると過焼結しやすくなり、また、角型性も低下する。一方、0.02%を超えると焼結性、角型性が共に低下する。

【0013】本発明のR-Fe-B系希土類永久磁石材料を製造するには、Nd系磁石の一般的な製造方法にしたがって製造すればよい。その一例を示せば、まず、原料となるNd、Fe、B及び添加元素(Co、Al、Cu、Zr、Cr等)を所定の割合に配合し、高周波溶解して合金を铸造する。この場合、製造に用いるCu、Zr、Crは、原料として用いるFeやAlとの混合物でもよい。そして、得られた合金をジョークラッシャーやブラウンミル等で粗粉碎し、その後、アトライターやボールミル等を用いた有機溶媒による湿式法や、窒素ガスによるジェットミルのような乾式法により微粉碎する。微粉の粒径は特に限定しないが、平均1~10 μ mが好ましい。得られた微粉末は約10kOe程度の磁場中で磁場方向に配向させ、約0.2~2ton/cm²の圧力でプレス成形する。そして、プレス成形してできた成形体を、高真空中又は不活性ガス中で、1,000~1,200℃、1~2時間焼結し、さらに焼結温度よりも低い温度(600℃程度)で焼処理する。これによ

2%以下の微量のLa、Ce、Sm、Ni、Mn、Ca、Mg、S、Pは、本発明の効果を損ねてはない。

【0014】

【実施例】以下、本発明に対する実施例を具体的に示すが、本発明はこれらに限定されるものではない(実施例1、比較例1)出発原料として、Nd、電解鉄、Co、フェロボロン、Al、Cu、フェニウムを使用した。そして、これらの原料を比(%)で30Nd-1Dy-BAL、Fe-31B-0.5Al-0.2Cu-XZr(X=0.5)の組成に配合した後、アルミナるつぼ中で高解し、水冷銅鑄型に注入して各種組成の铸塊(イト)を得た。次に、これらの铸塊をブラウンミル碎し、さらに窒素気流中のジェットミルで微粉碎均粒径3 μ m程度の微粉末を得、この微粉末と潤滑のあるステアリン酸を0.07%窒素雰囲気中のキサーで混合した。その後、これらの微粉末を成金の型に充填し、10kOeの磁界中で配向させ、1.2ton/cm²の圧力でス成形した。得られた成形体を1,060℃で2Ar雰囲気中で焼結した後、冷却し、さらに601時間Ar雰囲気中で熱処理して、Zr含有量が各種組成のR-Fe-B系希土類永久磁石材料を得た。なお、铸塊から焼結までの工程間は全て窒素中で移動を行い、酸素含有量の低減に努めた。その結果、このR-Fe-B系希土類永久磁石材料における、酸素、窒素の各含有量は、それぞれ0.08、0.095%、0.15~0.25%、0.01~0.15%であった。そして、これらのR-Fe-B系希土類永久磁石材料について、保磁力(iHc)及磁束密度(Br)を測定し、得られた結果を図1に示した。その結果、図1からわかるように、Zrの含有0.3%までは、無添加のものに比べて残留磁束密度低下させることなく、保磁力を増加させることができた。また、Zrの添加量が0.3%を超えると、添加しないものに比べて、残留磁束密度、保磁力減少した。さらに、Zrの含有量が0.1%の場合、残留磁束密度を0.2kG、保磁力を2kOe増大することができ、磁気特性が大幅に向上した。

材料について、角型比を測定し、得られた結果を図2に示した。その結果、図2からわかるように、酸素含有量が0.1%未満では過焼結となり、角型比が低下した。また、酸素含有量が0.8%より多いと焼結性が悪くなり、角型比が低下した。すなわち、磁気特性中の角型比に関して、酸素含有量は0.1~0.8%がよいことがわかる。

【0016】(実施例3、比較例3) 実施例1、比較例1と同様の原料、方法により、重量比(%)で30.5Nd-1.5Pr-BAL、Fe-2Co-1.1B-0.7Al-0.1Cu-0.12r-XC(X=0.01~0.12)の組成に配合し、R-Fe-B系希土類永久磁石材料を作製した。酸素含有量は0.65~0.75%、窒素含有量は0.015~0.020%であった。そして、これらのR-Fe-B系希土類永久磁石材料について、角型比を測定し、得られた結果を図3に示した。その結果、図3からわかるように、炭素含有量が0.03%未満では過焼結となり、角型比が低下した。また、炭素含有量が0.1%より多いと焼結性が悪くなり、角型比が低下した。すなわち、磁気特性中の角型比に関して、炭素含有量は0.03~0.1%がよいことがわかる。

【0017】(実施例4、比較例4) 実施例1、比較例1と同様の原料、方法により、重量比(%)で30.5Nd-1.0Dy-BAL、Fe-2Co-1.1B-0.6Al-0.1Cu-0.12rの組成に配合後、窒素を0.001~0.03%まで含有させてR-Fe-B系希土類永久磁石材料を作製した。なお、窒素含有量の変化は、原料中の窒素含有量が異なるロットを使用することで調整した。R-Fe-B系希土類永久磁石材料における炭素、酸素の各含有量は、それぞれ0.055~0.065%、0.35~0.45%であった。そして、これらのR-Fe-B系希土類永久磁石材料について、角型比を測定し、得られた結果を図4に示した。その結果、図4からわかるように、窒素含有量が0.002%未満では過焼結となり、角型比が低下した。また、窒素含有量が0.02%より多いと焼結性が悪くなり、角型比が低下した。すなわち、磁気特性中の角型比に関して、窒素含有量は0.002~0.02%がよいことがわかる。

0.75%、0.005~0.01%であった。そして、これらのR-Fe-B系希土類永久磁石材料で、保磁力(iHc)及び残留磁束密度(Br)し、得られた結果を図5に示した。その結果、図わかるように、Crの含有量が0.25%までは加のものに比べて残留磁束密度を低下させること保磁力を増加させることができた。また、Crの0.25%を超えても、Crを添加しないもので、残留磁束密度は大きく減少したが、保磁力はた。さらに、Crの含有量が0.1%の場合は、束密度を0.2kG、保磁力を2kOe増加させることができ、磁気特性が大幅に向上した。

【0019】(実施例6、比較例6) 実施例5、5と同様の原料、方法により、重量比(%)で3Nd-0.5Tb-BAL、Fe-1Co-1.0.8Al-0.1Cu-0.1Crの組成に配その後、酸素を0.08~1.10%まで含有さ-Fe-B系希土類永久磁石材料を作製した。炭量は0.035~0.045%、窒素含有量は0.5~0.010%であった。酸素含有量の変化は碎・プレス時の雰囲気中の酸素含有量を変化させた。そして、これらのR-Fe-B系希土類永久材料について、角型比を測定し、得られた結果を示した。その結果、図6からわかるように、酸素が0.1%未満では過焼結となり、角型比が低下また、酸素含有量が0.8%より多いと焼結性がり、角型比が低下した。すなわち、磁気特性中のに、酸素含有量は0.1%~0.8%がよいことがわかる。

【0020】(実施例7、比較例7) 実施例5、5と同様の原料、方法により、重量比(%)で3Nd-1.5Pr-BAL、Fe-2Co-1.0.7Al-0.1Cu-0.1Cr-XC(X0.15~0.12)の組成に配合し、R-Fe-B系希土類永久磁石材料を作製した。酸素含有量は0.0.75%、窒素含有量は0.015~0.02あった。そして、これらのR-Fe-B系希土類石材料について、角型比を測定し、得られた結果に示した。その結果、図7からわかるように、炭量が0.03%未満では過焼結となり、角型比が

の変化は、原料中の窒素含有量が異なるロットをしようすることで調整した。炭素、酸素の各含有量は、それぞれ0.055~0.065%、0.35~0.45%であった。そして、これらのR-Fe-B系希土類永久磁石材料について、保磁力(iHc)及び残留磁束密度(Br)を測定し、得られた結果を図8に示した。その結果、図8からわかるように、窒素含有量が0.002%未満では過焼結となり、角型比が低下した。また、窒素含有量が0.02%より多くなると焼結性が悪くなり、角型比が低下した。すなわち、磁気特性中の角型比10

【0022】

【発明の効果】本発明によれば、高い保磁力及び残留磁*

*束密度をもつR-Fe-B系希土類永久磁石材料れる。

【図面の簡単な説明】

【図1】Zr量と保磁力(iHc)及び残留磁束(Br)の関係を示す図である。

【図2】酸素量と角型比の関係を示す図である。

【図3】炭素量と角型比の関係を示す図である。

【図4】窒素量と角型比の関係を示す図である。

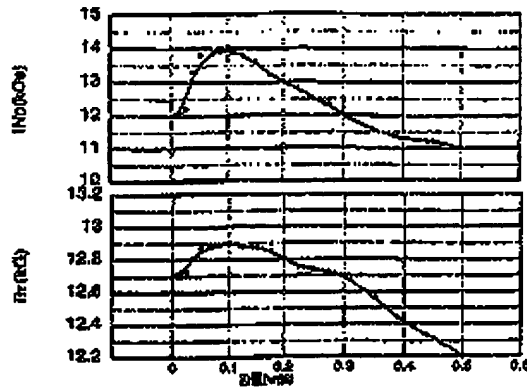
【図5】Cr量と保磁力(iHc)及び残留磁束(Br)の関係を示す図である。

【図6】酸素量と角型比の関係を示す図である。

【図7】炭素量と角型比の関係を示す図である。

【図8】窒素量と角型比の関係を示す図である。

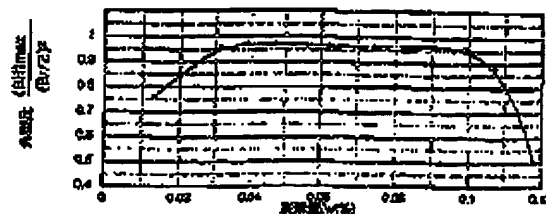
【図1】



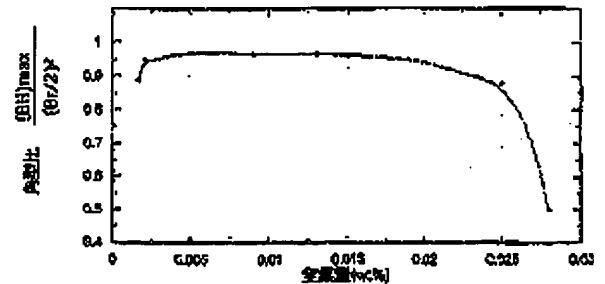
【図2】



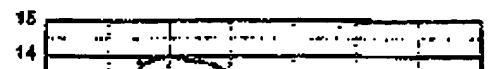
【図3】



【図4】



【図5】

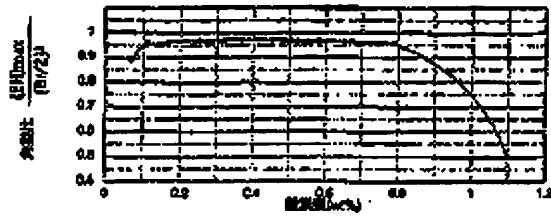


【図7】

(5)

特開2000-2341

【図6】



【図8】

